

Japanese Patent Laid-open Publication No. 2003-276047 A

Publication date: September 30, 2003

Applicant: NIPPON ZEON CO LTD

Title: METHOD FOR MOLDING VINYL ALICYCLIC HYDROCARBON  
5 POLYMER COMPOSITION, AND MOLDED BODY

[Scope of Claims for Patent]

[Claim 1] A method of molding a resin composition, which  
comprises mixing pellets A of a resin composition  
10 containing 100 parts by weight of a vinyl alicyclic  
hydrocarbon polymer and 0.001 to 2.0 parts by weight of an  
antioxidant, with pellets B of a resin composition  
containing 100 parts by weight of a vinyl alicyclic  
hydrocarbon polymer and 2 to 20 parts by weight of a light  
15 stabilizer, in a weight ratio of  $5 \leq A/B \leq 50$ , followed by  
melt-molding the mixture.

[Claim 2] The molding method according to claim 1, wherein  
the pellets B further comprise 0.01 to 1.5 parts by weight  
of an antioxidant.

20 [Claim 3] The molding method according to claim 1 or 2,  
wherein the light stabilizer is a hindered amine-based  
light stabilizer.

[Claim 4] The molding method according to any one of  
claims 1 to 3, wherein the pellets A and B are cylindrical,  
25 and both the ratio  $(\phi_B/\phi_A)$  of the average diameter ( $\phi_B$ ) of  
the pellets B to the average diameter of the pellets A ( $\phi_A$ )  
and the ratio  $(L_B/L_A)$  of the average height ( $L_B$ ) of the  
pellets B to the average height of the pellets A ( $L_A$ ) are  
in the range of 0.6 to 1.5.

30 [Claim 5] A molded product produced by mixing pellets A of  
a resin composition containing 100 parts by weight of a

vinyl alicyclic hydrocarbon polymer and 0.001 to 2.0 parts  
by weight of an antioxidant, with pellets B of a resin  
composition containing 100 parts by weight of a vinyl  
alicyclic hydrocarbon polymer and 2 to 20 parts by weight  
5 of a light stabilizer, in a weight ratio of  $5 \leq A/B \leq 50$ ,  
followed by melt-molding the mixture.

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Technical Field of the Invention]

10 The present invention relates to a method of molding a  
resin composition containing a vinyl alicyclic hydrocarbon  
polymer and in particular to a method of molding a resin  
composition suitable for producing an optical material.

15

[0008] The vinyl alicyclic hydrocarbon polymer used in the  
present invention is a polymer wherein a repeating unit  
having the same structure as that of a repeating unit  
obtained by vinyl addition polymerization of a vinyl group-  
20 containing saturated alicyclic hydrocarbon compound  
(hereinafter, "vinyl cycloalkane"), that is, a repeating  
unit having an alicyclic structure in its side chain, is  
contained in an amount of preferably 50% or more, more  
preferably 70% or more, still more preferably 80% or more,  
25 in the total repeating units of the polymer. From the  
viewpoint of mechanical strength, heat resistance and  
molding processability, the number of carbon atoms  
constituting the alicyclic structure is usually in the  
range of 4 to 30, preferably 5 to 20, more preferably 5 to  
30 15, most preferably 6. Such vinyl alicyclic hydrocarbon  
polymer includes, for example, a polymer of vinyl  
cycloalkane, a polymer of vinyl cycloalkene, and a  
hydrogenated product thereof, and an aromatic ring

hydrogenated product of a polymer of an aromatic vinyl compound.

[0009] The aromatic vinyl compound includes, for example, styrene,  $\alpha$ -methyl styrene,  $\alpha$ -ethyl styrene,  $\alpha$ -propyl styrene,  $\alpha$ -isopropyl styrene,  $\alpha$ -t-butyl styrene, 2-methyl styrene, 3-methyl styrene, 4-methyl styrene, 2,4-diisopropyl styrene, 2,4-dimethyl styrene, 4-t-butyl styrene, 5-t-butyl-2-methyl styrene, 4-monochlorostyrene, dichlorostyrene, 4-monofluorostyrene, 4-phenyl styrene, etc.

10 The vinyl cycloalkene includes 4-vinyl cyclohexene, 4-isopropenyl cyclohexene, 1-methyl-4-vinyl cyclohexene, 2-methyl-4-vinyl cyclohexene, 1-methyl-4-isopropenyl cyclohexene, 2-methyl-4-isopropenyl cyclohexene, etc. The vinyl cycloalkane includes vinyl cyclohexane, 3-methyl isopropenyl cyclohexane, etc.

[0010] The vinyl alicyclic hydrocarbon polymer may contain copolymerizable components in a range such that the content thereof in the polymer is less than 50 wt%, the copolymerizable components including  $\alpha$ -olefins such as ethylene, propylene, 1-butene, 1-pentene, 1-hexene, 1-heptene, 1-octene, 1-nonene, 1-decene, 1-dodecene, 1-eicosene, isobutene, 2-methyl-1-butene, 2-methyl-1-pentene, 4-methyl-1-pentene, 4,6-dimethyl-1-heptene, etc.; cyclopentadiene monomers such as cyclopentadiene, 1-methyl dicyclopentadiene, 2-methyl cyclopentadiene, 2-ethyl cyclopentadiene, 5-methyl cyclopentadiene, 5,5-dimethyl cyclopentadiene, etc.; cyclic olefinic monomers such as cyclobutene, cyclopentene, cyclohexene, dicyclopentadiene, etc.; conjugated diene monomers such as butadiene, isoprene, 1,3-pentadiene, 1,3-cyclohexadiene, etc.; nitrile monomers such as acrylonitrile, methacrylonitrile,  $\alpha$ -chloroacrylonitrile, etc.; (meth)acrylate monomers such as

· methyl methacrylate, ethyl methacrylate, propyl  
· methacrylate, butyl methacrylate,  
[0011] methyl acrylate, ethyl acrylate, propyl acrylate,  
butyl acrylate, etc.; unsaturated fatty acid monomers such  
5 as acrylic acid, methacrylic acid, maleic anhydride, etc.;  
monomers such as acrolein, methacrolein, methyl vinyl  
ketone, methyl isopropenyl ketone, etc.; ether monomers  
such as ethylene oxide, propylene oxide, trimethylene oxide,  
trioxane, dioxane, cyclohexene oxide, styrene oxide,  
10 epichlorohydrin, tetrahydrofuran, methyl vinyl ether, ethyl  
vinyl ether, phenyl vinyl ether, etc.; and heterocycle-  
containing monomers such as N-vinyl carbazole, N-vinyl  
pyrrolidone, N-phenyl maleimide, etc.

[0012] The copolymer containing the above copolymerizable  
15 compound as a copolymerizable component may be a random  
copolymer, a block copolymer, and an inclined block  
copolymer. The block copolymer may be a di-block copolymer,  
tri-block copolymer, tetra-block copolymer, penta-block  
copolymer, hexa-block copolymer, hepta-block copolymer,  
20 etc., and the number of blocks in the block copolymer is  
not particularly limited. The lengths of the blocks may be  
the same or different from each other. The configuration  
of the vinyl alicyclic hydrocarbon polymer used in the  
present invention may be atactic, isotactic or syndiotactic.

25 [0013] The method of producing the vinyl alicyclic  
hydrocarbon polymer used in the present invention comprises  
homopolymerizing or copolymerizing the above compound by a  
known polymerization method such as radical polymerization,  
anion polymerization, cation polymerization, etc. to give  
30 the polymer. The method of hydrogenation of unsaturated  
bonds including those in the aromatic ring is not  
particularly limited and may be carried out in a usual  
manner. In the hydrogenation reaction, the carbon-carbon

unsaturated bonds including those in the aromatic ring are hydrogenated to a degree of preferably 80% or more, more preferably 95% or more, still more preferably 99 to 100%.

5

[0017] The light stabilizer contained in the resin composition pellets B used in the present invention includes a hindered amine light stabilizer (HALS), a benzoate light stabilizer, etc. among which the hindered amine light stabilizer is preferable. By incorporating these light stabilizers, a change in the color tone of the molded product upon irradiation with ultraviolet light can be prevented.

[0018] Specific examples of HALS include bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) sebacate, bis(1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidyl) sebacate, 1-[2-{3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl) propionyloxy} ethyl]-4-{3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl) propionyloxy}-2,2,6,6-tetramethyl piperidine, 8-benzyl-7,7,9,9-tetramethyl-3-octyl-1,2,3-triazaspiro[4,5]undecane-2,4-dione, 4-benzoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl piperidine, dimethyl succinate/1-(2-hydroxyethyl)-4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethyl piperidine polycondensate, poly[{6-(1,1,3,3-tetramethyl butyl) amino-1,3,5-triazine-2,4-diyl} {(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino} hexamethylene {(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino}], N,N'-bis(3-aminopropyl) ethylene diamine-2,4-bis[N-butyl-N-(1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidyl) amino]-6-chloro-1,3,5-triazine condensate, tetraxy(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) 1,2,3,4-butane tetracarboxylate, 1,2,3,4-butanetetracarboxylic acid/1,2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidinol/tridecyl alcohol condensate,

[0019] N,N',N'',N'''-tetrakis-(4,6-bis-(butyl-(N-methyl-2,2,6,6-tetramethyl piperidin-4-yl) amino)-triazin-2-yl)-4,7-diazadecane-1,10-diamine, dibutyl amine/1,3,5-triazine/N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) butyl  
5 amine polycondensate, poly[{(1,1,3,3-tetramethyl butyl) amino-1,3,5-triazine-2,4-diyl} {(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino} hexamethylene {(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino}], 1,6-hexane diamine-N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)/morpholine-2,4,6-trichloro-1,3,5-  
10 triazine polycondensate, poly[(6-morpholino-s-triazine-2,4-diyl) [(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino]-hexamethylene [(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino]] dimethyl succinate/4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-piperidine ethanol condensate, and 1,2,3,4-butane  
15 tetracarboxylic acid/1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidinol/3,9-bis(2-hydroxy-1,1-dimethyl ethyl)-2,4,8,10-tetraoxaspiro[5,5]undecane mixed ester.

[0020] Preferable among those described above are compounds having an Mn of 2,000 to 5,000, such as dibutyl  
20 amine/1,3,5-triazine/N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) butyl amine polycondensate, poly[{(1,1,3,3-tetramethyl butyl) amino-1,3,5-triazine-2,4-diyl} {(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino} hexamethylene {(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) imino}], and dimethyl  
25 succinate/4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-piperidine ethanol condensate.

[0021] The resin composition pellets A and the resin composition pellets B used in the present invention may contain various additives if necessary in addition to the  
30 vinyl alicyclic hydrocarbon polymer and the antioxidant or the light stabilizer. Examples of the additives include stabilizers such as a heat stabilizer, a UV absorber, near IR absorber, etc.; resin modifiers such as a lubricant,

plasticizer, etc.; coloring agents such as a dye and pigment; and an antistatic agent. These additives may be used alone or as a mixture of two or more thereof, and the content thereof is suitably selected in a range such that the object of the present invention is not hindered.

[0027]

[Examples]

Hereinafter, the present invention will explained in more detail with reference to Production Examples, Examples, and Comparative Examples. In these examples, "parts" and "%" are expressed on a weight basis unless otherwise specified. However, the present invention is not limited to the Production Example and the Examples. Measurement of various physical properties was carried out according to the following methods.

(1) Molecular weight

Polystyrene standard-equivalent weight-average molecular weight ( $M_w$ ) was determined at 30°C by GPC with tetrahydrofuran (THF) as solvent.

(2) Molecular weight distribution

Polystyrene standard-equivalent number-average molecular weight ( $M_n$ ) was determined at 30°C by GPC with THF as solvent, and the ratio of  $M_w$  to  $M_n$  ( $M_w/M_n$ ) was calculated.

(3) Degree of hydrogenation

The degrees of hydrogenation of the major chain and aromatic ring of the vinyl alicyclic hydrocarbon polymer were determined by measuring  $^1\text{H}$ -NMR spectrum.

(4) Glass transition temperature ( $T_g$ )

Determined with DSC according to JIS K7121.

[0028] (5) Evaluation of the coloration of a molded product

Using a spectrophotometer (U-30 manufactured by JASCO Corporation), the portion of a 10.4-inch light guide plate which had a light path length of 250 mm, produced as described below, was measured for its light transmittance and evaluated.

(6) Evaluation of the durability of the molded product

After a backlight unit assembled using the light guide plate by the following method was continuously lighted for 1,500 hours, the long light path (light path length of 250 mm) of the used light guide plate was measured for its yellow index ( $\Delta YI$ ) by means of a long-light-path color difference meter (ASA-300A, manufactured by Nippon Denshoku Industries Co., Ltd.) to evaluate the degree of coloration. [0029] [Production Example 1]

A sufficiently dried stainless steel reactor equipped with a stirrer was purged with nitrogen, then charged with 400 parts of dehydrated cyclohexane, 30 parts of styrene and 0.20 part of dibutyl ether, and while the mixture was stirred at 60°C, 0.72 part of a solution of n-butyl lithium (concentration of 15%) in hexane was added thereto to initiate the polymerization reaction. One hour after the polymerization reaction was initiated, 45 parts of styrene were added continuously thereto over 1 hour, and the polymerization reaction was carried out for additional 0.5 hour. The degree of conversion of styrene was 100%. 15 parts of isoprene were further added to the reaction solution, and the polymerization was further carried out for 1 hour. 10 parts of styrene were further added, and the polymerization reaction was further continued for 1 hour. 0.2 part of isopropyl alcohol was added to the reaction solution to terminate the reaction. The degrees of conversion of both styrene and isoprene were 100%.



[0030] 500 parts by weight of the above polymerization reaction solution was transferred to a pressure-resistant reactor equipped with a stirrer, and as a hydrogenation catalyst, 3 parts of a diatomaceous earth-supported nickel catalyst (E22U, manufactured by Nikki Chemical Co., Ltd.) were added to and mixed with the polymerization reaction solution. After the gaseous phase in the reactor was replaced by a hydrogen gas, the solution was subjected under stirring to hydrogenation reaction with hydrogen supplied at a pressure of 4.5 MPa at a temperature of 170°C for 6 hours. After the hydrogenation reaction was finished, the reaction solution was filtered to remove the hydrogenation catalyst, and as an antioxidant, 0.1 part of pentaerythritol tetrakis[3-(3,5-di-t-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate] was added to and dissolved in the reaction solution, followed by removing the solvent under the conditions of 260°C and 10 Torr with a thin-film drying machine (manufactured by Buss AG). The resulting block copolymer from which the solvent had been removed was extruded in a molten state through a die of an extruder to give a strand which was then cooled with water and cut to give pellets. The resulting pellets were designated pellets A<sub>1</sub>. The resulting hydrogenated block copolymer was a 3-dimensional block copolymer consisting of a styrene-derived repeating unit-containing block (hereinafter, St), an isoprene-derived repeating unit-containing block (hereinafter, Ip), and St. The Mw of the block copolymer was 65,000, the Mw/Mn ratio was 1.19, and the degree of hydrogenation of the main chain and aromatic ring was 99.9%.

[0031] [Example 1]

To 100.1 parts of the pellets A<sub>1</sub> produced in the Production Example 1 were added 6.0 parts of a dibutyl amine/1,3,5-triazine-N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-

piperidyl)-1,6-hexamethylene diamine/N-(2,2,6,6-tetramethyl-4-pyridyl) butyl amine polycondensate (HALS (A): Mn=3,000) as a hindered amine light stabilizer, and the mixture was kneaded in a twin screw extruder (TEM-35B manufactured by Toshiba Machine Co., Ltd., screw diameter 37 mm, L/D=32, screw revolution 150 rpm, resin temperature 240°C, feed rate 20 kg/hour) and then extruded into a strand. This strand was cooled with water and cut by a pelletizer to give pellets B<sub>1</sub>. The content of HALS in the pellets was measured by gel permeation chromatography, and as a result, the content of HALS based on the whole of the resin composition was 5.7%, thus revealing that 100% of the added HALS (A) had remained without decomposition in the composition. Accordingly, the content of HALS in 100 parts of the vinyl alicyclic hydrocarbon polymer was 6.0 parts. [0032] The pellets A<sub>1</sub> and B<sub>1</sub> obtained in the Production Example 1 were mixed with each other by a pellet blender in a ratio of 100 parts of pellets A<sub>1</sub> to 4 parts of pellets B<sub>1</sub> (A/B=25), and in a hot-air drying machine through which air was circulated, the resulting pellet mixture was dehydrated by drying at 70°C for 2 hours and then injection-molded by an injection-molding machine (Product No. IS450, manufactured by Toshiba Machine Co., Ltd.) in a side-gate mold system with a hot runner, to form a light guide plate of 10.4 inches. The molding conditions were a mold temperature of 80°C and a cylinder temperature of 270°C. The resulting light guide plate was in a wedge form having a gradually decreasing thickness from the side of the thick-walled part to the side of the thin-walled part (in the approximately vertical direction to the axis of a linear light source), and the thickness of the thick-walled part at the incident-light side was 2.5 mm, while the

thickness of the thin-walled part at the opposite side was 1.5 mm, the length of the light guide plate from the side of the thick-walled part to the side of the thin-walled part was 190 mm, and the length of the plate along the incident-light surface was 250 mm. When the light guide plate, at a position of 250 mm in the length direction along the incident-light surface, was measured for its light transmittance, the light transmittance was 87%. Further, a white ink pattern for light reflection was formed on one side of the broadest face of the light guide plate, and then surrounding parts were arranged on the light guide plate by a method described below, to produce a backlight unit. A cool cathode tube and a lamp reflector were arranged at the incident-light surface that was the edge face of the light guide plate at the side of 2.5 mm in thickness, and a light reflection sheet was arranged on the surface. Thereafter, the cool cathode tube was lighted continuously for 1,500 hours. The degree of coloration (yellow index:  $\Delta YI$ ) of the light guide plate before and after the continuous lighting was measured, indicating that  $\Delta YI=12.2$  before lighting, and  $\Delta YI=14.1$  after lighting.

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-276047

(P2003-276047A)

(43) 公開日 平成15年9月30日 (2003.9.30)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マコード (参考)
B 2 9 C 45/00		B 2 9 C 45/00	4 F 0 7 0
C 0 8 J 3/20	C E S	C 0 8 J 3/20	C E S Z 4 F 2 0 6
C 0 8 L 23/18		C 0 8 L 23/18	4 J 0 0 2
25/02		25/02	
// B 2 9 K 23:00		B 2 9 K 23:00	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2002-79073 (P2002-79073)

(22) 出願日 平成14年3月20日 (2002.3.20)

(71) 出願人 000229117

日本ゼオン株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目6番1号

(72) 発明者 小原 禎二

神奈川県川崎市川崎区夜光一丁目2番1号

日本ゼオン株式会社総合開発センター内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ビニル脂環式炭化水素重合体組成物の成形方法及び成形体

## (57) 【要約】

【課題】 着色がなく、長期に紫外線を照射しても色調変化のない成形体を提供すること。

【解決手段】 ビニル脂環式炭化水素重合体100重量部及び酸化防止剤0.001～2.0重量部を含有する樹脂組成物のペレットAと、ビニル脂環式炭化水素重合体100重量部及び耐光安定剤2～20重量部を含有する樹脂組成物のペレットBとを、重量比で $5 \leq A/B \leq 50$ の比率で混合し、次いで、熔融成形する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び酸化防止剤 0.001～2.0 重量部を含有する樹脂組成物のペレット A と、ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び耐光安定剤 2～20 重量部を含有する樹脂組成物のペレット B とを、重量比で  $5 \leq A/B \leq 50$  の比率で混合し、次いで、熔融成形することとを特徴とする樹脂組成物の成形方法。

【請求項 2】 ペレット B が、酸化防止剤 0.01～1.5 重量部をさらに含有する請求項 1 記載の成形方法。

【請求項 3】 耐光安定剤が、ヒンダードアミン系光安定剤である請求項 1 又は 2 記載の成形方法。

【請求項 4】 ペレット A 及びペレット B が円柱状であり、ペレット B の平均直径  $\phi_B$  とペレット A の平均直径  $\phi_A$  との比率 ( $\phi_B/\phi_A$ ) 及び、ペレット B の平均高さ  $L_B$  とペレット A の平均高さ  $L_A$  との比率 ( $L_B/L_A$ ) が、いずれも 0.6～1.5 である請求項 1 乃至 3 記載の成形方法。

【請求項 5】 ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び酸化防止剤 0.001～2.0 重量部を含有する樹脂組成物のペレット A と、ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び耐光安定剤 2～20 重量部を含有する樹脂組成物のペレット B とを、重量比で  $5 \leq A/B \leq 50$  の比率で混合し、次いで、熔融成形してなる成形体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ビニル脂環式炭化水素重合体を含有する樹脂組成物の成形方法に関し、さらに詳しくは、光学用材料などを得るのに好適な樹脂組成物の成形方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】ビニル脂環式炭化水素重合体は、透明性、低複屈折性及び低吸湿性等に優れ、光学レンズなどの材料として好ましい特性を有する。また、成形時の流動性に優れることから、最近では、液晶ディスプレイの導光板などとして、大型、薄型のものや、微細な凹凸形状等を有するものにも好適であることが報告されている。液晶ディスプレイを薄型化、小型化し、さらにディスプレイの輝度を高めるために、導光板と光源との距離を短くしたり光源の強度を上げたりする。そのため導光板に従来以上の耐光性が要求される。耐光性を高める方法として、国際公開 WO00/69956 号公報には、耐光安定剤 0.05～1 重量%を水素化ポリスチレンに含有させる方法や、国際公開 WO01/92412 号公報には、ビニル脂環式炭化水素重合体に、ヒンダードアミン系耐光安定剤を 0.01～20 重量部含有させる方法が開示されている。

【0003】ビニル脂環式炭化水素重合体に耐光安定剤を含有させるために、例えば、重合体を合成した後の溶

液に耐光安定剤を溶解させて、次いで溶媒を除去する方法が用いられている。溶媒除去に際しては、異物混入を防ぐため及び透明性を保つために直接乾燥法が用いられている。ところが直接乾燥法ではビニル脂環式炭化水素重合体に長時間高熱が加わるので、その過程で耐光安定剤が分解したり変色したりするという問題がある。また、ビニル脂環式炭化水素重合体に耐光安定剤を含有させる別の方法として、ペレット化したビニル脂環式炭化水素重合体に耐光安定剤を粉末で添加して 2 軸混練機等により熔融混練して再度ペレット化する方法もある。ところがこの方法でも、得られたペレットで成形した成形品は、耐光性が不十分で色調が悪くなる。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、着色がなく、長期に紫外線を照射しても色調変化のない成形体を提供することである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者は、前記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、ビニル脂環式炭化水素重合体の樹脂ペレットを用いて成形体を成形するにあたり、特定量の酸化防止剤を含む樹脂ペレット、及び、特定量の耐光安定剤を含む樹脂ペレットをそれぞれ製造し、それらを特定の割合でペレットでブレンドして加熱熔融成形することにより、成形直後に着色がなく、長期に紫外線を照射しても色調変化のない成形体が見出し、その知見に基づいて本発明を完成するに至った。

【0006】かくして本発明によれば、

1. ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び酸化防止剤 0.001～2.0 重量部を含有する樹脂組成物のペレット A と、ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び耐光安定剤 2～20 重量部を含有する樹脂組成物のペレット B とを、重量比で  $5 \leq A/B \leq 50$  の比率で混合し、次いで、熔融成形することとを特徴とする樹脂組成物の成形方法、

2. ペレット B が、酸化防止剤 0.01～1.5 重量部をさらに含有する上記 1 記載の成形方法、

3. 耐光安定剤が、ヒンダードアミン系光安定剤である上記 1 又は 2 記載の成形方法、

4. ペレット A 及びペレット B が円柱状であり、ペレット B の平均直径  $\phi_B$  とペレット A の平均直径  $\phi_A$  との比率 ( $\phi_B/\phi_A$ ) 及び、ペレット B の平均高さ  $L_B$  とペレット A の平均高さ  $L_A$  との比率 ( $L_B/L_A$ ) が、いずれも 0.6～1.5 である上記 1 乃至 3 記載の成形方法、

5. ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び酸化防止剤 0.001～2.0 重量部を含有する樹脂組成物のペレット A と、ビニル脂環式炭化水素重合体 100 重量部及び耐光安定剤 2～20 重量部を含有する樹脂組成物のペレット B とを、重量比で  $5 \leq A/B \leq 50$  の比率

で混合し、次いで、熔融成形してなる成形体、が、それぞれ提供される。

#### 【0007】

【発明の実施の形態】本発明の方法は、ビニル脂環式炭化水素重合体100重量部及び酸化防止剤0.001～2.0重量部を含有する樹脂組成物のペレットAと、ビニル脂環式炭化水素重合体100重量部及び耐光安定剤を2～20重量部を含有する樹脂組成物のペレットBとを、重量比で $5 \leq A/B \leq 50$ の比率で混合し、次いで、熔融成形することを特徴とする。樹脂組成物ペレットA中の、ビニル脂環式炭化水素重合体100重量部に対する酸化防止剤の含有量は、好ましくは0.01～1.5重量部、より好ましくは0.1～1.0重量部である。ペレットA中の酸化防止剤の含有量が少なすぎると成形体が黄変し易くなり、多すぎると成形体の光線透過性が低下する。したがってペレットA中の酸化防止剤の含有量が上記範囲にあると色調及び光線透過性に優れた成形体が得られる。樹脂組成物ペレットB中の、ビニル脂環式炭化水素重合体100重量部に対する耐光安定剤の含有量は、好ましくは3～15重量部、より好ましくは4～10重量部である。ペレットB中の耐光安定剤の含有量が少なすぎると成形体が黄変し易くなり、多すぎるとペレットB中に均一に分散させられなくなり成形体の光線透過性が低下する。したがってペレットB中の耐光安定剤の含有量が上記範囲にあると色調及び光線透過性に優れた成形体が得られる。また、本発明方法においては、ペレットBが、酸化防止剤0.01～1.5重量部をさらに含有していることが好ましい。ペレットBが酸化防止剤を含有すると、耐光安定剤の配合時に変色が生じにくくなる。樹脂組成物ペレットAとペレットBとの混合比率は、重量比で、好ましくは $10 \leq A/B \leq 40$ 、より好ましくは $15 \leq A/B \leq 30$ である。A/Bが小さすぎると成形体の色調が悪くなり易く、大きすぎると成形体中に耐光安定剤が均一分散できなくなる。したがってA/Bが上記範囲にあると無色かつ透明性に優れ、耐光安定剤が均一に分布し、照射により色調むらが生じ難い成形体が得られる。

【0008】本発明に使用するビニル脂環式炭化水素重合体は、ビニル基を有する飽和脂環式炭化水素化合物（以降、ビニルシクロアルカンと略記する）をビニル付加重合して得られる繰り返し単位と同じ構造の繰り返し単位、すなわち側鎖に脂環式構造を有する繰り返し単位を、重合体の全繰り返し単位中、好ましくは50%以上、より好ましくは70%以上、さらに好ましくは80%以上含有する重合体である。脂環式構造を構成する炭素原子数は機械的強度、耐熱性、成形加工性の観点から、通常4～30個、好ましくは5～20個、より好ましくは5～15個の範囲であり、最も好ましくは6個である。このようなビニル脂環式炭化水素系重合体としては、例えば、ビニルシクロアルカンの重合体、ビニルシ

クロアルケンの重合体及びその水素添加物、芳香族ビニル化合物の重合体の芳香環水素添加物などが挙げられる。

【0009】芳香族ビニル化合物としては、例えば、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、 $\alpha$ -エチルスチレン、 $\alpha$ -プロピルスチレン、 $\alpha$ -イソプロピルスチレン、 $\alpha$ -t-ブチルスチレン、2-メチルスチレン、3-メチルスチレン、4-メチルスチレン、2,4-ジイソプロピルスチレン、2,4-ジメチルスチレン、4-t-ブチルスチレン、5-t-ブチル-2-メチルスチレン、4-モノクロロスチレン、ジクロロスチレン、4-モノフルオロスチレン、4-フェニルスチレン、等が挙げられる。ビニルシクロアルケンとしては、4-ビニルシクロヘキセン、4-イソプロペニルシクロヘキセン、1-メチル-4-ビニルシクロヘキセン、2-メチル-4-ビニルシクロヘキセン、1-メチル-4-イソプロペニルシクロヘキセン、2-メチル-4-イソプロペニルシクロヘキセン、等が挙げられる。ビニルシクロアルカンとしては、ビニルシクロヘキサン、3-メチルイソプロペニルシクロヘキサン等が挙げられる。

【0010】また、上記ビニル脂環式炭化水素重合体は、重合体中の含有量が50重量%未満となる範囲で、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ドデセン、1-エイコセン、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4,6-ジメチル-1-ヘプテン等の $\alpha$ -オレフィン類；シクロペンタジエン、1-メチルシクロペンタジエン、2-メチルシクロペンタジエン、2-エチルシクロペンタジエン、5-メチルシクロペンタジエン、5,5-ジメチルシクロペンタジエン等のシクロペンタジエン系単量体；シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘキセン、ジシクロペンタジエン等の環状オレフィン系単量体；ブタジエン、イソブレン、1,3-ペンタジエン、1,3-シクロヘキサジエン等の共役ジエン系単量体；アクリロニトリル、メタアクリロニトリル、 $\alpha$ -クロロアクリロニトリル等のニトリル系単量体；メタアクリル酸メチルエステル、メタアクリル酸エチルエステル、メタアクリル酸プロピルエステル、メタアクリル酸ブチルエステル、

【0011】アクリル酸メチルエステル、アクリル酸エチルエステル、アクリル酸プロピルエステル、アクリル酸ブチルエステル等の（メタ）アクリル酸エステル系単量体；アクリル酸、メタアクリル酸、無水マレイン酸等の不飽和脂肪酸系単量体；アクロレイン、メタクロレイン、メチルビニルケトン、メチルイソプロペニルケトン等の単量体；エチレンオキシド、プロピレンオキシド、トリメチレンオキシド、トリオキサン、ジオキサン、シクロヘキセンオキシド、スチレンオキシド、エピクロロヒドリン、テトラヒドロフラン、メチルビニ

ルエーテル、エチルビニルエーテル、フェニルビニルエーテル等のエーテル系単量体；N-ビニルカルバゾール、N-ビニルピロリドン、N-フェニルマレイミド等の複素環含有単量体；等を共重合成分として含有していてもよい。

【0012】上記の共重合可能な化合物を共重合成分とする共重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、傾斜ブロック共重合体等の何れでも良い。ブロック共重合体の場合、ジブロック共重合体、トリブロック共重合体、テトラブロック共重合体、ペンタブロック共重合体、ヘキサブロック共重合体、ヘプタブロック共重合体等、ブロック数は特に限定されない。また、各ブロックのブロック長が互いに同じでも異なってもよい。本発明で使用するビニル脂環式炭化水素重合体の立体配置については、アタクティック、アイソタクティック、シンジオタクティックの何れでもよい。

【0013】本発明に用いるビニル脂環式炭化水素系重合体の製造方法は、前述の化合物を、ラジカル重合、アニオン重合、カチオン重合等の公知の重合方法を用いて単独重合または共重合することにより得られる。また、芳香環を含む不飽和結合の水素添加方法は格別の制限は無く、常法に従えばよい。水素添加反応において、芳香族環を含む全ての炭素-炭素不飽和結合を、好ましくは80%以上、より好ましくは95%以上、さらに好ましくは99~100%水素添加する。

【0014】本発明で使用するビニル脂環式炭化水素重合体のガラス転移温度(T<sub>g</sub>)は、好ましくは80~250℃、より好ましくは90~200℃、さらに好ましくは100~150℃の範囲である。ブロック共重合体では、通常、高温側のT<sub>g</sub>が上記範囲であることが好ましい。T<sub>g</sub>が上記範囲にあるときに、強度特性、耐熱性と成形加工性のバランスに優れる。ビニル脂環式炭化水素重合体の重量平均分子量(M<sub>w</sub>)は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)により測定されるポリスチレン換算値で、好ましくは10,000~500,000、より好ましくは30,000~350,000、さらに好ましくは50,000~200,000の範囲である。また、ビニル脂環式炭化水素重合体の分子量分布は、上記M<sub>w</sub>と、同様にGPCで測定されるポリスチレン換算の数平均分子量(M<sub>n</sub>)との比(M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>)で表した場合に、好ましくは5以下、より好ましくは4以下、さらに好ましくは3以下、特に好ましくは2以下である。このM<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>が大き過ぎると、機械特性や耐熱性が低下する。特に機械強度、耐熱性、成形性を高度にバランスさせるには、M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>が2以下であることがさらに好ましく、1.7以下がより好ましく、1.3以下が最も好ましい。

【0015】本発明に用いる樹脂組成物ペレットAに含まれる酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤などが挙げら

れ、これらの中でもフェノール系酸化防止剤、特にアルキル置換フェノール系酸化防止剤が好ましい。これらの酸化防止剤を配合することにより、透明性、低吸水性等を低下させることなく、成形時の酸化劣化等による成形体の着色や強度低下を防止できる。フェノール系酸化防止剤としては、例えば、オクタデシル-3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、1,1,3-トリス(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェニル)ブタン、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、テトラキスメチレン-3-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニルプロピオネート)メタン[すなわち、ペンタエリスリチル-テトラキス3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオネート)]などのアルキル置換フェノール系化合物；2-*t*-ブチル-6-(3-*t*-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート、2,4-ジ-*t*-アミル-6-{1-(3,5-ジ-*t*-アミル-2-ヒドロキシフェニル)エチル}フェニルアクリレートなどのアクリレート系化合物；6-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-*t*-ブチルアニリノ)-2,4-ビスオクチルチオ-1,3,5-トリアジン、4-ビスオクチルチオ-1,3,5-トリアジンなどのトリアジン基含有フェノール系化合物などが挙げられる。

【0016】リン系酸化防止剤としては、例えば、トリフェニルホスファイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、トリス(ジノニルフェニル)ホスファイト、トリス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ホスファイトなどのモノホスファイト系化合物；4,4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-*t*-ブチルフェニル)-ジ-トリデシルホスファイト)などのジホスファイト系化合物などが挙げられる。イオウ系酸化防止剤としては、例えば、ジラウリル-3,3-チオジプロピオネート、ジミリスチル3,3'-チオジプロピオネート、ジステアリル-3,3-チオジプロピオネート、ラウリルステアリル-3,3-チオジプロピオネートなどが挙げられる。

【0017】本発明に用いる樹脂組成物ペレットBに含まれる耐光安定剤としては、ヒンダードアミン系光安定剤(HALS)、ベンゾエート系光安定剤などが挙げられ、これらの中でもヒンダードアミン系光安定剤が好ましい。これらの光安定剤を配合することにより、紫外線照射による成形体の色調の変化を抑制することができる。

【0018】HALSの具体例としては、ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケー

ト、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ビペリジル)セバケート、1-[2-{3-(3, 5-ジ-第3ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ}エチル]-4-{3-(3, 5-ジ-第3ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ}-2, 2, 6, 6, -テトラメチルビペリジン、8-ベンジル-7, 7, 9, 9, -テトラメチル-3-オクチル-1, 2, 3-トリアザスピロ[4, 5]ウンデカン-2, 4-ジオン、4-ベンゾイルオキシ-2, 2, 6, 6, -テトラメチルビペリジン、コハク酸ジメチル-1, 2, 2, 6, 6-テトラメチルビペリジン重縮合物、ポリ[6-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)アミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジイル]{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}ヘキサメチレン{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}、N, N'-ビス(3-アミノプロピル)エチレンジアミン-2, 4-ビス[N-ブチル-N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ビペリジル)アミノ]-6-クロロ-1, 3, 5-トリアジン縮合物、テトラキシ(2, 2, 6, 6, -テトラメチル-4-ビペリジル)1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸と1, 2, 2, 6, 6, -テトラメチル-4-ビペリジノールとトリデシルアルコールとの縮合物、

【0019】N, N', N'', N'''-テトラキス-(4, 6-ビス-(ブチル-(N-メチル-2, 2, 6, 6-テトラメチルビペリジン-4-イル)アミノ)-トリアジン-2-イル)-4, 7-ジアザデカン-1, 10-ジアミン、ジブチルアミンと1, 3, 5-トリアジンとN, N'-ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)ブチルアミンとの重縮合物、ポリ[6-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)アミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジイル]{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}ヘキサメチレン{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}、1, 6-ヘキサンジアミン-N, N'-ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)とモルフォリン-2, 4, 6-トリクロロ-1, 3, 5-トリアジンとの重縮合物、ポリ[6-(モルフォリノ-s-トリアジン-2, 4-ジイル){(2, 2, 6, 6, -テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}-ヘキサメチレン{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}]コハク酸ジメチルと4-ヒドロキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチル-1-ビペリジンエタノールとの重合体、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸と1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ビペリジノールと3, 9-ビス(2-ヒドロキシ-1, 1-ジメチルエチル)-2, 4, 8,

10-テトラオキサスピロ[5, 5]ウンデカンとの混合エステル化物などが挙げられる。

【0020】これらの中でも、ジブチルアミンと1, 3, 5-トリアジンとN, N'-ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)ブチルアミンとの重縮合物、ポリ[6-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)アミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジイル]{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}ヘキサメチレン{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジル)イミノ}、コハク酸ジメチルと4-ヒドロキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチル-1-ビペリジンエタノールとの重合体などのMnが2000~5000のものが好ましい。

【0021】上記本発明に用いる樹脂組成物ペレットA及び樹脂組成物ペレットBは、ビニル脂環式炭化水素重合体及び酸化防止剤又は耐光安定剤以外に、必要に応じて各種添加剤を含有していてもよい。添加剤の具体例としては、熱安定剤、紫外線吸収剤、近赤外線吸収剤などの安定剤；滑剤、可塑剤などの樹脂改質剤；染料や顔料などの着色剤；帯電防止剤などが挙げられる。これらの添加剤は、単独で、あるいは2種以上を組み合わせて用いることができ、その含有量は本発明の目的を損ねない範囲で適宜選択される。

【0022】樹脂組成物ペレットAは、上記ビニル脂環式炭化水素重合体に、上記酸化防止剤及び必要に応じて上記添加剤を配合し、ペレット状に形成して得られる。樹脂組成物ペレットBは、上記ビニル脂環式炭化水素重合体に、上記耐光安定剤及び必要に応じて上記添加剤を配合し、ペレット状に形成して得られる。ビニル脂環式炭化水素重合体に、上記の、酸化防止剤又は耐光安定剤、及び添加剤（以降、配合剤と略記する）を配合する方法は、例えば、配合剤を適当な溶剤に溶解してビニル脂環式炭化水素重合体の溶液に添加した後、溶媒を除去して配合剤を含むビニル脂環式炭化水素重合体を回収する方法、ミキサー、二軸混練機、ロール、ブラベンダー、押出機などでビニル脂環式炭化水素重合体を溶融状態にして配合剤と混練する方法等が挙げられる。

【0023】本発明に用いる樹脂組成物ペレットA及び樹脂組成物ペレットBは、上記の配合剤を含むビニル脂環式炭化水素重合体を、加熱溶融させ、押出機などからストランド状に押出し、冷却後にペレタイザー等でカットすることにより得られる。

【0024】樹脂組成物ペレットA及び樹脂組成物ペレットBの形状は限定はないが、円柱状であるのが好ましい。その場合において、円柱状には、「略円柱状」のものを含む。「略円柱状」のペレットとは、該ペレットの、円柱の軸に垂直な断面が略円形で、円柱の軸を含む断面が略四辺形であるものである。本発明方法に用いる樹脂組成物ペレットA及び樹脂組成物ペレットBが円柱状の場合には、略円柱状ペレットの最大直径をペレット



の直径、略円柱状ペレットの最大高さをペレットの高さとしたときに、それらの平均直径が通常 1.5~4 mm、好ましくは 1.8~3.5 mm、より好ましくは 2.0~3.0 mm であり、平均高さが通常 1.5~5 mm、好ましくは 2.0~4.5 mm、より好ましくは 2.5~4.0 mm である。ペレット A 及びペレット B の平均直径は小さい方が、ペレット A とペレット B を混合して射出成形した場合に成形体中の酸化防止剤や耐光安定剤が均一に分散し易く好ましいが、ペレット及びペレット B の平均直径が上記範囲より小さい場合、成形体にヤケが生じ易くなり好ましくない。またペレット及びペレット B の平均直径が上記範囲より大きい場合、ペレット A とペレット B を混合して射出成形する場合に、十分均一に混じりあわず成形体中に配合剤が均一に分散しない等の不具合が生じ易い。さらに本発明方法においては、ペレット A とペレット B とは、その大きさが同程度であることが好ましい。ペレット B の平均直径  $\phi_B$  とペレット A の平均直径  $\phi_A$  との比率 ( $\phi_B/\phi_A$ ) 及び、ペレット B の平均長さ  $L_B$  とペレット A の平均長さ  $L_A$  との比率 ( $L_B/L_A$ ) は、いずれも、好ましくは 0.6~1.5、より好ましくは 0.7~1.4、さらに好ましくは 0.75~1.3 である。( $\phi_B/\phi_A$ ) 及び ( $L_B/L_A$ ) が上記範囲にあると、ペレット A とペレット B とが熔融後に均一に混合され、酸化防止剤及び耐光安定剤が均一に分散した成形体を得ることができる。

【0025】本発明方法においては、樹脂組成物ペレット A と樹脂組成物ペレット B とを混合し、次いで熔融成形する。熔融成形の方法としては、射出成形法、押出成形法、ブロー成形法、プレス成形法、などが挙げられるが、着色がなく、光線透過性に優れた成形体を得るためには、射出成形法、押出成形法が好ましい。樹脂組成物ペレット A と樹脂組成物ペレット B とを混合する方法としては、ペレットブレンダー、ヘンシェルミキサーなどを用いる方法が挙げられる。熔融成形の際には、樹脂組成物ペレット A と樹脂組成物ペレット B とを均一に熔融混合させるために、加熱シリンダーの樹脂温度を、好ましくは 220~300℃、より好ましくは 230~290℃、さらに好ましくは 240~280℃とする。加熱シリンダーの温度がこの温度を越える場合は、ビニル脂環式炭化水素重合体が熱分解し易くなり好ましくない。またこの温度を下回る場合は、熔融粘度が高く、ペレット A とペレット B の混合が十分でなくなり易くこのまじくしない。

【0026】本発明方法においては、成形体の形状を、楔状、球状、棒状、板状、円柱状、筒状、レンズ状等、種々の形状にすることができる。本発明方法において得られた成形体は、光学レンズ、液晶ディスプレイ用導光板、車両灯具用ライトガイド、偏光板、位相板、液晶基板、光拡散板、医療用器具、容器などの種々の分野において利用することができる。

## 【0027】

【実施例】以下に、製造例、実施例及び比較例を挙げて、本発明についてより具体的に説明する。これらの例中の〔部〕及び〔%〕は、特に断わりのない限り重量基準である。ただし本発明は、これらの製造例、実施例のみに限定されるものではない。各種の物性の測定は、下記の方法に従って行った。

### (1) 分子量

テトラヒドロフラン (THF) を溶媒にして、30℃で GPC により測定し、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量 (Mw) を求めた。

### (2) 分子量分布

THF を溶媒にして、30℃で GPC により測定し、標準ポリスチレン換算の数平均分子量 (Mn) を求め、Mw と Mn の比 (Mw/Mn) を算出した。

### (3) 水素添加率

ビニル脂環式炭化水素重合体の、主鎖及び芳香環の水素添加率は、<sup>1</sup>H-NMR スペクトルを測定し算出した。

### (4) ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>)

JIS K7121 に基づいて DSC にて測定した。

### 【0028】(5) 成形体の着色の評価

分光光度計 (日本分光社製の U-30) を用いて、下記において製造した 10.4 インチの導光板の、光路長 250 mm の部分の光線透過率を測定して評価した。

### (6) 成形体の紫外線照射による耐久性評価

下記の方法により導光板を用いて組み立てたバックライトユニットを 1500 時間連続点灯させた後に、使用した導光板の長光路 (光路長 250 mm) のイエローインデックス (ΔYI) を、長光路色差計 (日本電色工業株式会社製 ASA-300A) を用いて測定し、着色の程度を評価した。

【0029】〔製造例 1〕十分に乾燥した、攪拌装置を備えたステンレス鋼製反応器を窒素置換し、脱水シクロヘキサン 400 部、スチレン 30 部及びジブチルエーテル 0.20 部を仕込み、60℃で攪拌しながら n-ブチルリチウムのヘキサン溶液 (濃度 15%) 0.72 部を添加して重合反応を開始した。重合反応開始から 1 時間経過後、反応溶液中に、スチレン 45 部を 1 時間に亘って連続的に添加し、重合反応をさらに 0.5 時間行なった。スチレンの転化率は 100% であった。次いで、イソブレン 15 部を反応溶液にさらに添加して、重合反応をさらに 1 時間行なった。次いで、スチレン 10 部をさらに添加して、重合反応をさらに 1 時間継続した。そして、反応溶液にイソプロピルアルコール 0.2 部を添加して反応を停止させた。スチレンおよびイソブレンの転化率は共に 100% であった。

【0030】上記重合反応溶液 500 部を、攪拌装置を備えた耐圧反応器に移送し、水素化触媒として、ケイソウ土担持型ニッケル触媒 (E22U、日揮化学社製) 30 部を添加して混合した。反応器内の気相部を水素ガスで

置換した後、溶液を攪拌しながら水素を供給し、温度170℃、圧力4.5MPaにて6時間水素化反応を行った。水素化反応終了後、反応溶液をろ過して水素化触媒を除去し、酸化防止剤としてペンタエリスリトールテトラキス〔3-〔3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル〕プロピオネート〕0.1部を添加、溶解させ、薄膜乾燥機(Buss AG社製)を使用して、260℃、10 Torrの条件で脱溶剤を行った。脱溶剤されたブロック共重合体を、押出機で熔融状態でダイからストランドとして押し出し、水冷した後、カッティングしてペレットを得た。ここで得られたペレットをペレットA<sub>1</sub>とする。得られた水素化ブロック共重合体は、スチレン由来の繰返し単位を含有するブロック(以降Stと略記する)、イソブレン由来の繰返し単位を含有するブロック(以降Ipと略記する)、及びStとからなる3元ブロック共重合体であった。該ブロック共重合体のMwは65,000、Mw/Mnは1.19、主鎖及び芳香環の水素化率は99.9%であった。

【0031】〔実施例1〕製造例1で製造したペレットA<sub>1</sub>100.1部に、ヒンダードアミン系耐光安定剤として、ジブチルアミンと1,3,5-トリアジン・N,N'-ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)-1,6-ヘキサメチレンジアミンとN-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)ブチルアミンとの重縮合物(HALS(A):Mn=3000)を、6.0部添加し、二軸混練機(東芝機械社製;TEM-35B、スクリュー径37mm、L/D=32、スクリュー回転数150rpm、樹脂温度240℃、フィードレート20kg/時間)で混練し、ストランド状に押し出した。これを水冷してペレタイザーで切断し、ペレットB<sub>1</sub>を得た。該ペレット中のHALS含有量を、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより測定した結果、樹脂組成物全体量に対して5.7%であり、添加したHALS(A)が分解等せずに組成物中に100%残存していた。よって、HALSの、ビニル脂環式炭化水素重合体100部に対する含有量は6.0部であった。

【0032】製造例1で得られたペレットA<sub>1</sub>及び上記ペレットB<sub>1</sub>を、ペレットブレンダーにてペレットA<sub>1</sub>100部に対してペレットB<sub>1</sub>4部(A/B=25)の重量比で混合し、空気を流通させた熱風乾燥器を用いて70℃で2時間乾燥して水分を除去した後、ホットランナーを有し且つサイドゲート金型方式の射出成形装置(東芝機械株式会社製の製品番号IS450)を用いて、射出成形により10.4インチの導光板を成形した。成形条件は、金型温度80℃、シリンダー温度270℃とした。得られた導光板は、肉厚部側から肉薄部側へ遠ざかる(直線状光源の軸芯と略垂直方向)につれて厚みが漸次薄くなるような楔形であり、入光面側の肉厚部の厚みが2.5mm、反対側の肉薄部の厚みが1.5

mm、肉厚部側から肉薄部側にかけての長さが190mm、入光面に沿った長さ250mmであった。上記方法により、導光板の入光面に沿った長さ方向250mmの光線透過率を測定したところ、光線透過率は87%であった。さらに、導光板の最も広い面の片面に光反射のための白色インクパターンを形成した後に、上記導光板に下記の方法により周辺部品を設置してバックライトユニットを製造した。該導光板の厚み2.5mm側の端面を入光面として、該面側に冷陰極管及びランプリフレクタを設置し、該面の上に光反射シートを設置した。その後前記冷陰極管を1500時間連続点灯させた。連続点灯の前後の該導光板の着色度(イエローインデックス:ΔYI)を測定した結果、点灯前ΔYI=12.2、点灯後ΔYI=14.1であった。

【0033】〔比較例1〕HALS(A)の添加量を、ペレットA<sub>1</sub>100.1部に対して0.89部に変える以外は実施例1と同様にしてHALSを配合したペレットB<sub>2</sub>を得た。該ペレット中のHALS含有量は、樹脂組成物全体量に対して0.9%であり、添加したHALS(A)が分解等せずに組成物中に100%残存していた。よって、HALSの含有量はビニル脂環式炭化水素重合体100部に対して0.89部であった。

【0034】製造例1で得られたペレットA<sub>1</sub>及び上記ペレットB<sub>2</sub>を、ペレットブレンダーにてペレットA<sub>1</sub>100部に対してペレットB<sub>2</sub>33部(A/B=3)の重量比で混合し、実施例1と同様にして導光板を製造して評価した結果、250mmの光線透過率は86%、冷陰極管を1500時間連続点灯する前及び後の該導光板のΔYIは12.6及び15.7であった。

【0035】〔比較例2〕HALS(A)の添加量を、ペレットA<sub>1</sub>100.1部に対して16.0部に変える以外は実施例1と同様にしてHALSを配合したペレットB<sub>3</sub>を得た。該ペレット中のHALS含有量は、樹脂組成物全体量に対して13.8%であり、添加したHALS(A)が分解等せずに組成物中に100%残存していた。よって、HALSの含有量はビニル脂環式炭化水素重合体100部に対して16.0部であった。

【0036】製造例1で得られたペレットA<sub>1</sub>及び上記ペレットB<sub>3</sub>を、ペレットブレンダーにてペレットA<sub>1</sub>100部に対してペレットB<sub>3</sub>1.6部(A/B=63)の重量比で混合し、実施例1と同様にして導光板を製造して評価した結果、250mmの光線透過率は87%、冷陰極管を1500時間連続点灯する前及び後の該導光板のΔYIは12.1及び24.2であった。

【0037】〔比較例3〕酸化防止剤を添加しなかった以外は製造例1と同様の方法で製造したペレットA<sub>2</sub>を、ペレットA<sub>1</sub>の代わりに用いた以外は、実施例1と同様に導光板を製造して評価した結果、250mmの光線透過率は82%、冷陰極管を1500時間連続点灯する前及び後の該導光板のΔYIは16.4及び22.

5であった。

【0038】【比較例4】製造例1で製造したペレットA<sub>1</sub>100、1部に、HALS(A)を、0.22部添加し、実施例1同様に二軸混練機で混練し、ストランド状に押し出した。これを水冷してペレタイザーで切断し、ペレットB<sub>4</sub>を得た。ペレットA<sub>1</sub>とペレットB<sub>1</sub>との混合物の代わりに、このペレットB<sub>4</sub>のみを用いて、実施例1と同様に導光板を製造して評価した結果、250mmの光線透過率は85%、冷陰極管を1500時間連続点灯前及び後の該導光板のΔYIは13.5及び15.8であった。

【0039】以上、実施例と比較例とを比較すると、本

発明の方法により製造した導光板は、成形直後の光線透過率が85%以上、冷陰極管点灯後のΔYIも15未満と優れるのに対し（実施例1）、ペレットAとペレットBとの混合割合が適当でない範囲で成形した比較例1及び比較例2の導光板、酸化防止剤を含有しないペレットを用いて成形した比較例3の導光板、耐光安定剤を含有するペレットのみで成形した比較例4の導光板は、いずれも、成形直後の光線透過率が85%以下と低いか、冷陰極管点灯後のΔYIが15以上であった。

【0040】

【発明の効果】本発明によれば、着色がなく、長期に紫外線を照射しても色調変化のない成形体が提供される。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テマコード(参考)

B 2 9 K 25:00

B 2 9 K 25:00

Fターム(参考) 4F070 AA12 AA17 AA18 AB01 AC37  
AC45 AC50 AC55 AE03 FA03  
FB07 FC05  
4F206 AA12 AA13 AB06 AH73 AR12  
AR13 JA07 JF01 JF02 JF21  
4J002 BB171 BC011 BC021 EJ016  
EJ026 EJ046 EU087 EU186  
EU207 EV046 EW066 FD047  
FD076